

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2003年3月6日 (06.03.2003)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 03/018502 A1

(51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C03C 27/12 [JP/JP]; 〒530-8565 大阪府 大阪市 北区 西天満 2 丁目 4 番 4 号 Osaka (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP02/07583 (72) 発明者: および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 深谷 重一 (FUKATANI, Juichi) [JP/JP]; 〒528-8585 滋賀県 甲賀郡 水口町泉 1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP). 吉岡 忠彦 (YOSHIOKA, Tadahiko) [JP/JP]; 〒528-8585 滋賀県 甲賀郡 水口町泉 1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP). 小幡 真穂 (KOBATA, Shin-nen) [JP/JP]; 〒528-8585 滋賀県 甲賀郡 水口町泉 1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP).

(22) 国際出願日: 2002年7月26日 (26.07.2002)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願2001-226193 2001年7月26日 (26.07.2001) JP  
特願2001-236554 2001年8月3日 (03.08.2001) JP  
特願2001-233085 2001年8月23日 (23.08.2001) JP  
特願2002-133016 2002年5月8日 (08.05.2002) JP  
特願2002-133017 2002年5月8日 (08.05.2002) JP  
特願2002-133020 2002年5月8日 (08.05.2002) JP

(74) 代理人: 安富 康男 (YASUTOMI, Yasuo); 〒532-0011 大阪府 大阪市 淀川区 西中島 5 丁目 4 番 20 号 中央ビル Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,

[統葉有]

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.)

(54) Title: LAMINATED GLASS-USE INTERMEDIATE FILM AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

(57) Abstract: A laminated glass-use intermediate film excellent in transparency, heat shielding performance, electromagnetic wave transmitting performance and weatherability; and laminated glass. A laminated glass-use intermediate film intervened between two sheets of glass selected from a group consisting of clear glass, green glass and high-heat-absorbing glass to form laminated glass, wherein a electromagnetic shielding performance at frequencies of 0.1-10 MHz and 2-26.5 GHz is up to 10 dB, a haze up to 1.0%, a visible light transmittance at least 70%, and a solar transmittance in a 300 nm-2100 nm wavelength region up to 85% of a visible light transmittance.

(57) 要約:

本発明の目的は、透明性、遮熱性、電磁波透過性及び耐候性に優れる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することである。

本発明は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、周波数0.1～10 MHz及び2～26.5 GHzにおける電磁波シールド性能が10 dB以下、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、かつ、300 nm～2100 nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下である合わせガラス用中間膜である。

WO 03/018502 A1



LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO,  
NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL,  
TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA,  
ZM, ZW.

特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,  
NE, SN, TD, TG).

(34) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW,  
MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ヨーラシア特許  
(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ  
特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR,  
GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI 特

添付公開書類:  
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイド」を参照。

## 明細書

## 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

## 技術分野

5 透明性、遮熱性、電磁波透過性及び耐候性に優れる合わせガラス用中間膜及び  
合わせガラスに関する。

## 背景技術

従来より、合わせガラスは、外部衝撃を受けて破損しても、ガラスの破片が飛  
散することが少なく安全であるため、自動車等の車両、航空機、建築物等の窓ガ  
ラス等として広く使用されている。このような合わせガラスとしては、少なくとも  
一対のガラス間に、例えば、可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラール  
樹脂等のポリビニルアセタール樹脂からなる合わせガラス用中間膜（以下、中間  
膜ともいう）を介在させ、一体化させたもの等が挙げられる。

10 しかし、このような中間膜を用いた合わせガラスは安全性に優れているものの、  
遮熱性に劣るという問題点があった。一般に、光線のなかでも、780 nm以上  
の波長をもつ赤外線は、紫外線と比較するとエネルギー量が約10%程度と小  
さいが熱的作用が大きく、いったん物質に吸収されると熱として放出され温度上昇  
をもたらすことから、熱線と呼ばれている。従って、例えば、自動車のフロント  
ガラスやサイドガラスから入る赤外線を遮断できるようにすれば、遮熱性が高ま  
り、自動車内部の温度上昇を抑えることができる。

遮熱性を高めたガラス板としては、例えば、熱線カットガラス等が市販されて  
いる。熱線カットガラスは直射太陽光の遮断を目的として、金属蒸着、スペッタ  
リング加工等によって、ガラス板の表面に金属／金属酸化物の多層コーティング  
を行ったものである。コーティング層は、外部からの擦傷に弱く、耐薬品性も劣  
るため、例えば、可塑化ポリビニルブチラール樹脂膜等の中間膜を積層して合  
わせガラスとされていた。しかし、実際には、人間が最も熱感を感じる領域である  
中赤外線領域は効果的にカットされておらず、特に、人間が皮膚の表皮温度の上  
昇により熱感を感じる領域（1400～1600 nm, 1800～2000 nm

)、及び、皮膚の深層の熱感を感じる神経末端に到達し人間が刺激感を感じる領域 (1200~1400 nm, 1600~1800 nm, 2000~2400 nm) の波長は完全にはカットされていなかった。

また、金属／金属酸化物の多層コーティングがなされた熱線カットガラスは、  
5 高価である；コーティング層が厚いため透明性（可視光透過率）が低い；コーティング層と中間膜との接着性が低下し中間膜の剥離や白化が起こる；電磁波、特に通信波長域の電磁波の透過を阻害し携帯電話、カーナビゲーションシステム、ガレージオープナー、現金自動収受等の通信機能に支障をきたす等の問題点があつた。

10 このような問題点の解決策として、例えば、特公昭61-52093号公報、特開昭64-36442号公報等に可塑化ポリビニルアセタール樹脂シートの間に金属蒸着したポリエスチルフィルムを積層した中間膜を用いた合わせガラスが提案されている。しかしながら、これらの合わせガラスは、可塑化ポリビニルアセタール樹脂シートとポリエスチルフィルムとの間の接着性に問題があり、界面  
15 で剥離が起こるだけでなく、電磁波透過性、特に通信波長領域の電磁波透過性も不充分であった。

近年、高度情報化社会の進展と共に、情報処理、情報通信分野で高速化、高機能化が求められてきている。情報通信分野においては、携帯電話、カーナビゲーションシステム等の移動通信機器の通信容量増大に伴い、使用する周波数は極超  
20 短波帯 (300 MHz ~ 1 GHz) から準マイクロ波帯 (1 ~ 3 GHz) へと移行しつつある。また、欧米ではすでに実用化されているETC (E l e c t r i c T o l l C o l l e c t i o n S y s t e m、有料道路自動料金収受システム) が最近ではアジア各国でも導入が進められている。このETCは料金所  
25 ゲートに設置されたアンテナと車両に装着された車載器との間で路車問通信を行うことにより、料金所で停車することなく、自動的に料金の支払い、通行が可能となるシステムである。

日本においても、2000年4月24日から千葉圏内を中心とする首都圏54ヶ所の料金所において試用運転が開始された。2001年度からは、東名、名神、

中央高速道路等約600ヶ所の料金所へ、2003年3月末までに全国900ヶ所の料金所へ全国展開される予定である。国際標準化が進められているのは5.

8GHz帯アクティブ方式であり、この波長帯の電磁波、特に通信波領域の電磁波透過性も非常に重要となってくる。以上のような高周波は熱に変換されて損失

5 する性質があるため、電気信号を効率よく伝達するためには、伝送損失の小さい材料が必要であり、ここでも低誘電率材料が要求される。

上記以外にも、VICS（自動車情報通信システム）には2.5GHz、アマチュア無線には3.5MHz帯、7MHz帯、緊急通信周波数には10MHz以下

10 の周波数帯がそれぞれ使用されており、更に衛星放送では12GHz帯が使用

されている。

一般に、誘電損失は下式（1）で表されることが知られている。

$$\text{誘導損失} = (27.3 \times f / C) \times \epsilon_r^{1/2} \times \tan \delta \quad (1)$$

式（1）中、 $f$  は周波数を表し、 $C$  は静電容量を表し、 $\epsilon_r$  は比誘電率を表し、 $\tan \delta$  は誘電正接を表す。

15 式（1）によると、周波数が高くなるほど誘電損失は大きくなり、誘電損失が大きくなると高周波の信号を吸収し、熱に変換する作用が大きくなり、効率よく信号が伝達できなくなる。誘電損失を小さく抑えるためには、比誘電率と誘電正接とを小さくする必要がある。誘電正接は直接比例関係にあるのに対して、比誘

電率はその平方根に比例するので、高周波用に誘電正接の小さい材料を選択する

20 必要がある。即ち、間接的な方法ではあるが、誘電率の測定を行えば、電磁波遮蔽性の評価を行うことが可能となる。比誘電率は主に電磁波の反射率の指標となり、誘電正接は主に電磁波の吸収率の指標となりうる。

しかしながら、上述した従来技術のガラス板の表面に金属／金属酸化物の多層コーティングした熱線反射ガラスや、可塑化ポリビニルアセタール樹脂シートの

25 間に金属蒸着したポリエスルフィルムを積層した合わせガラスでは、熱線カット物質が金属及び／又は導電性金属酸化物薄膜であるため、同時に電磁波も遮蔽してしまい、熱線遮蔽と電磁波（主に通信波長帯）の透過性、即ち低比誘電率と低誘電正接とを同時に満足させることはできなかった。

また、従来より使用されていた熱線反射ガラスや熱線反射ポリエチレンテレ

フタレート（P E T）を用いた熱線反射合わせガラスでは、加工性、作業性、生産性等に問題があり、更に電磁波をシールドするために、携帯電話、カーナビゲーター、ガレージオープナー、有料道路料金自動収受システム等の通信機能に故障をきたすという問題があった。

5 これに対して、特開2001-302289号公報には、遮熱性を有する錫ドープ酸化インジウム等の金属酸化物を中間膜中に分散させた合わせガラスが開示されている。この合わせガラスは、遮熱中間膜を用いていることにより、遮熱性、電磁波透過性に優れるが、熱、光等による耐久性試験において、耐久性試験時間と可視光透過率の劣化とが比例関係にあり、通常の中間膜を用いたものよりも可視光透過率が大きく低下し、黄色味の指標であるイエローインデックス値及びCIE1976 L\*a\*b\*表色系におけるb\*値も大きく増加する傾向があった。合わせガラスを、例えば、自動車用フロントガラスとして用いるには、法的に可視光透過率の下限規制が存在するため、特に耐久性試験において可視光透過率が変化しないことが重要であり、また、通常薄い青色の遮熱中間膜が黄色味を呈して15 いたり、耐候劣化により黄変を生じたりすることは、外観上好ましくない。しかしながら、従来の錫ドープ酸化インジウムを含有する中間膜では、可視光透過率、イエローインデックス値及びCIE1976 L\*a\*b\*表色系におけるb\*値等の光学品質の耐久性が充分でないという問題があった。

## 20 発明の要約

本発明は、透明性、遮熱性、電磁波透過性及び耐候性に優れる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することを特徴とする。

第1の本発明は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、25 周波数0.1～10MHz及び2～26.5GHzにおける電磁波シールド性能が10dB以下、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、かつ、300nm～2100nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下である合わせガラス用中間膜である。

第2の本発明は、測定周波数1MHz～1.86GHzにおける比誘電率が4.

5 以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が 0.1 以下であり、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1.0 % 以下、可視光透過率が 70 % 以上、かつ、300 nm ~ 2100 nm の波長領域での日射透過率が可視光透過率の 85 % 以下である合わせガラス用中間膜である。第 2 の本発明の合わせガラス用中間膜は、測定周波数 10 MHz における比誘電率が 4.2 以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が 0.08 以下であることが好ましく、測定周波数 100 MHz における比誘電率が 3.8 以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が 0.08 以下であることが好ましく、測定周波数 1 GHz における比誘電率が 3.4 以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が 0.08 以下であることが好ましく、測定周波数 1.8 GHz における比誘電率が 3.3 以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が 0.08 以下であることが好ましい。

第 3 の本発明は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1.0 % 以下、可視光透過率が 70 % 以上、波長領域 300 ~ 2100 nm での日射透過率が可視光透過率の 85 % 以下、かつ、波長領域 1500 ~ 2100 nm での中赤外線透過率が 20 % 以下である合わせガラス用中間膜である。第 3 の本発明の合わせガラス用中間膜は、波長領域 780 ~ 1500 nm での近赤外線透過率が 70 % 以下であることが好ましい。

第 4 の本発明は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1.0 % 以下、可視光透過率が 70 % 以上、300 nm ~ 2100 nm の波長領域での日射透過率が可視光透過率の 85 % 以下であり、かつ、波長領域 300 ~ 2500 nm の日射透過率積分値 T のうち、波長領域 1400 ~ 1600 nm の透過率積分値の割合 T<sub>b</sub> が 10.0 % 以下及び／又は波長領域 1800 ~ 2000 nm の透過率積分値の割合 T<sub>d</sub> が 2.0 % 以下である合わせガラス用中間膜である。

第 5 の本発明は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからな

る群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、  
ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、波長領域300～2100  
nmでの日射透過率が可視光透過率の85%以下であり、かつ、波長領域300  
～2500nmの日射透過率積分値Tのうち、波長領域1200～1400nm  
5 の透過率積分値の割合Taが15.0%以下及び／又は波長領域1600～18  
00nmの透過率積分値の割合Tcが3.0%以下及び／又は波長領域2000  
～2400nmの透過率積分値の割合Teが2.0%以下である合わせガラス用  
中間膜である。

第6の本発明は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからな  
る群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、  
10 ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、波長領域300～2100  
nmでの日射透過率が可視光透過率の85%以下であり、かつ、波長領域300  
～2500nmの日射透過率積分値Tのうち、波長領域1200～1400nm  
の透過率積分値の割合Taが15.0%以下及び／又は波長領域1400～16  
00nmの透過率積分値の割合Tbが10.0%以下及び／又は波長領域160  
0～1800nmの透過率積分値の割合Tcが3.0%以下及び／又は波長領域  
1800～2000nmの透過率積分値の割合Tdが2.0%以下及び／又は波  
長領域2000～2400nmの透過率積分値の割合Teが2.0%以下である  
15 合わせガラス用中間膜である。

第7の本発明は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからな  
る群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとし、強度10  
0mW/cm<sup>2</sup>、波長295～450nmの紫外線を300時間照射したときに、  
前記紫外線照射後の前記合わせガラスの可視光透過率の低下が2.0%以下である  
20 合わせガラス用中間膜である。第7の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリ  
アガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚  
のガラスの間に介在させて合わせガラスとし、強度100mW/cm<sup>2</sup>、波長2  
95～450nmの紫外線を300時間照射したときに、前記紫外線照射後の前  
記合わせガラスのイエローインデックス値の増加が4.0以下であることが好ま  
25

しく、前記紫外線照射後の前記合わせガラスのCIE1976 L\* a\* b\*表色系におけるb\*値の増加が3.0以下であることがより好ましい。

第1、第2、第3、第4、第5、第6又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜は、300～2100nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下であることが好ましい。

また、第1、第2、第3、第4、第5、第6又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜は、可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜であって、前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部、可塑剤20～60重量部、並びに、錫ドープ酸化インジウム(ITO)微粒子、アンチモンドープ酸化錫ATO微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛(AZO)微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛IZO微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種の微粒子0.1～3重量部を含有するものであり、前記微粒子は、平均粒径が80nm以下であり、かつ、粒径100nm以上の粒子が1個/μm<sup>2</sup>以下に分散しているものであることが好ましい。第1、第2、第3、第4、第5、第6又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜は、可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜であって、前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部、可塑剤20～60重量部、並びに、ジイモニウム系色素、アミニウム系色素、フタロシアニン系色素、アントラキノン系色素、ポリメチル系色素、ベンゼンジチオール型アンモニウム系化合物、チオ尿素誘導体及びチオール金属錯体からなる群より選択される少なくとも1種の化合物0.00001～5重量部を含有するものであり、前記化合物は、前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物中に均一に分散しているものであることも好ましい。第1、第2、第3、第4、第5、第6又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜は、可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜であって、前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部、可塑剤20～60重量部、錫ドープ酸化イン

ジウム (ITO) 微粒子、アンチモンドープ酸化錫 (ATO) 微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛 (AZO) 微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛 (IZO) 微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種の微粒子 0.1～3重量部、並びに、ジイモニウム系色素、アミニウム系色素、フタロシアニン系色素、アントラキノン系色素、ポリメチン系色素、ベンゼンジチオール型アンモニウム系化合物、チオ尿素誘導体及びチオール金属錯体からなる群より選択される少なくとも1種の化合物 0.00001～5重量部を含有するものであり、前記微粒子は、平均粒径が 80 nm 以下であり、かつ、粒径 100 nm 以上の粒子が 1 個 /  $\mu\text{m}^2$  以下に分散しているものであり、前記化合物は、前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物中に均一に分散しているものであることも好ましい。

ここで、上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。また、上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に、紫外線吸収剤として、マロン酸エステル系化合物及び／又はシュウ酸アニリド系化合物を含有することが好ましく、紫外線吸収剤として、マロン酸エステル系化合物及び／又はシュウ酸アニリド系化合物と、ベンゾトリアゾール系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物、ベンゾエート系化合物、及び、ヒンダードアミン系化合物からなる群より選択される少なくとも1種との混合物を含有することが好ましく、接着力調整剤として有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩、又は、変成シリコーンオイルを含有することが好ましく、分散安定剤として硫酸系エステル化合物、リン酸エステル系化合物、リシノール酸、ポリリシノール酸、ポリカルボン酸、多価アルコール型界面活性剤、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラールからなる群より選択される少なくとも1種を含有することが好ましい。

第8の本発明は、第1、第2、第3、第4、第5、第6又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスである。

第9の本発明は、第1、第2、第3、第4、第5、第6又は第7の本発明の合

わせガラス用中間膜又は第8の本発明の合わせガラス用いてなる車両用窓材料である。第9の本発明の車両用窓材料を用いてなる車両もまた、本発明の1つである。

第10の本発明は、第1、第2、第3、第4、第5、第6又は第7の本発明の5合わせガラス用中間膜又は第8の本発明の合わせガラス用いてなる建築用材料である。第10の本発明の建築用材料を用いてなる建築物もまた、本発明の1つである。

#### 発明の詳細な開示

10 第1の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、下述の光学特性を発現させるものである。なお、本明細書において、上記高熱線吸収ガラスとは、可視光透過率が75%以上、かつ、900～1300nmの全波長領域において透過率が65%以下である熱線吸収ガラスを意味する。また、上記ガラスの厚さとしては、クリアガラスは2.5mmであることが好ましく、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスは2mmであることが好ましい。

即ち、上記合わせガラスの周波数0.1～10MHz及び2～26.5GHzにおける電磁波シールド性能が10dB以下である。本明細書において上記電磁波シールド性能とは、測定周波数の電磁波が合わせガラスを透過する際にどの程度減衰するかを表す指標を意味する。この範囲の電磁波シールド性能が10dB以下であると、第1の本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスを自動車のフロントガラス等に用いた場合、車内でも問題なく近年の移動通信機器等を使用することができる。

25 上記合わせガラスのヘイズは1.0%以下である。1.0%を超えると、得られる合わせガラスの透明性が実用上不充分となる。なお、上記ヘイズは、積分式濁度計（東京電色社製）を使用し、JIS K 6714「航空機用メタクリル樹脂板」に準拠して、波長340～1800nmの光線に対する上記合わせガラ

スのヘイズを測定することにより得ることができる。

上記合わせガラスの可視光透過率は70%以上である。70%未満であると、得られる合わせガラスの透明性が実用上不充分となり、車両用フロントガラスの法規制に合格することができず、良好な視認性を妨げることになる。なお、上記

5 可視光透過率は、直記分光光度計（島津製作所社製、U-4000）を使用し、JIS R 3106「板ガラス類の透過率・反射率・放射率・日射熱取得率の試験方法」に準拠して、波長380～780nmの光線に対する上記合わせガラスの可視光透過率を測定することにより得ることができる。

上記合わせガラスは、波長領域300～2100nmでの日射透過率が可視光  
10 透過率の85%以下である。85%を超えると、得られる合わせガラスの遮熱性  
が実用上不充分となる。なお、上記日射透過率は、直記分光光度計（島津製作所  
社製、U-4000）を使用し、JIS R 3106に準拠して、波長300  
～2100nmの光線に対する上記合わせガラスの透過率を測定することにより  
得ることができる。

15 第1の本発明の合わせガラス用中間膜の膜厚としては特に限定されないが、合  
わせガラスとして最小限必要な耐貫通性や耐候性を考慮すると、実用的には、0.  
1～1.0mmであることが好ましい。より好ましくは0.3～0.8mmである。また、耐貫通性の向上等を目的として、必要に応じて本発明の中間膜に他の  
中間膜を積層して使用してもよい。

20 第2の本発明は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる  
群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、  
ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、かつ、300nm～210  
0nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下である合わせガラ  
ス用中間膜である。

25 第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、測定周波数1MHz～1.86GHz  
における比誘電率が4.5以下及び／又は誘電正接tanδが0.1以下である。  
これにより、第2の本発明の合わせガラス用中間膜は優れた電磁波透過性を  
有する。

また、第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、更に、10MHzにおける比誘電率が4.2以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が0.08以下であることが好ましく、100MHzにおける比誘電率が3.8以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が0.08以下であることが好ましく、1GHzにおける比誘電率が3.4以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が0.08以下であることが好ましく、1.86GHzにおける比誘電率が3.3以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が0.08以下であることが好ましい。これにより、第2の本発明の合わせガラス用中間膜の電磁波透過性は、一層優れたものとなる。

第2の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、かつ、300nm～2100nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下である。これらの性質については第1の本発明の合わせガラス用中間膜と同様である。また、厚さについても第1の本発明の合わせガラス用中間膜と同様である。

第3の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、波長領域300～2100nmでの日射透過率が可視光透過率の85%以下、かつ、波長領域1500～2100nmでの中赤外線透過率が20%以下である。

第3の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、波長領域1500～2100nmでの中赤外線透過率が20%以下である。20%を超えると、得られる合わせガラスの熱感刺激を低減する効果が実用上不充分となる。好ましくは15%以下であり、より好ましくは10%以下である。なお、上記中赤外線透過率は、直記分光光度計（島津製作所社製、U-4000）を使用し、JIS R 3106に準拠して、波長150.0～2100nmの光線に対する上記合わせガラスの透過率を測定し、測定結果をJIS Z 8722及びJIS R 3106記載の重価係数を用いて規格

化し、波長領域 1 5 0 0 ~ 2 1 0 0 nm の中赤外線領域の透過率を求ることにより得ることができる。

更に、上記合わせガラスは、波長領域 7 8 0 ~ 1 5 0 0 nm での近赤外線透過率が 7 0 % 以下であることが好ましい。7 0 % を超えると、得られる合わせガラスの遮熱性が実用上不充分となることがある。より好ましくは 6 0 % 以下であり、更に好ましくは 5 0 % 以下である。なお、上記近赤外線透過率は、直記分光光度計（島津製作所社製、U-4000）を使用し、J I S R 3106 に準拠して、波長 1 5 0 0 ~ 2 1 0 0 nm の光線に対する上記合わせガラスの透過率を測定し、測定結果を J I S Z 8722 及び J I S R 3106 記載の重価係数を用いて規格化し、波長領域 7 8 0 ~ 1 5 0 0 nm の近赤外線領域の透過率を求ることにより得ることができる。

第 3 の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1. 0 % 以下、可視光透過率が 7 0 % 以上、かつ、3 0 0 nm ~ 2 1 0 0 nm の波長領域での日射透過率が可視光透過率の 8 5 % 以下である。これらの性質については第 1 の本発明の合わせガラス用中間膜と同様である。また、厚さについても第 1 の本発明の合わせガラス用中間膜と同様である。

第 4 の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1. 0 % 以下、可視光透過率が 7 0 % 以上、3 0 0 nm ~ 2 1 0 0 nm の波長領域での日射透過率が可視光透過率の 8 5 % 以下であり、かつ、波長領域 3 0 0 ~ 2 5 0 0 nm の日射透過率積分値 T のうち、波長領域 1 4 0 0 ~ 1 6 0 0 nm の透過率積分値の割合 T b が 1 0. 0 % 以下及び 25 ノ又は波長領域 1 8 0 0 ~ 2 0 0 0 nm の透過率積分値の割合 T d が 2. 0 % 以下である。

第 5 の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1. 0 % 以下、可視光透過率が 7 0 % 以上、波

長領域 300～2100 nm の日射透過率が可視光透過率の 85% 以下であり、かつ、波長領域 300～2500 nm の日射透過率積分値  $T$  のうち、波長領域 1200～1400 nm の透過率積分値の割合  $T_a$  が 15.0% 以下及び／又は波長領域 1600～1800 nm の透過率積分値の割合  $T_c$  が 3.0% 以下及び／5 又は波長領域 2000～2400 nm の透過率積分値の割合  $T_e$  が 2.0% 以下である。

第 6 の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1.0% 以下、可視光透過率が 70% 以上、波長領域 300～2100 nm の日射透過率が可視光透過率の 85% 以下であり、かつ、波長領域 300～2500 nm の日射透過率積分値  $T$  のうち、波長領域 1200～1400 nm の透過率積分値の割合  $T_a$  が 15.0% 以下及び／又は波長領域 1400～1600 nm の透過率積分値の割合  $T_b$  が 10.0% 以下及び／又は波長領域 1600～1800 nm の透過率積分値の割合  $T_c$  が 3.0% 以下及び／又は波長領域 1800～2000 nm の透過率積分値の割合  $T_d$  が 2.0% 以下及び／又は波長領域 2000～2400 nm の透過率積分値の割合  $T_e$  が 2.0% 以下である。

第 4 の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、波長領域 300～2500 nm の日射透過率積分値  $T$  のうち、波長領域 1400～1600 nm の透過率積分値の割合  $T_b$  が 10.0% 以下及び／又は波長領域 1800～2000 nm の透過率積分値の割合  $T_d$  が 2.0% 以下である。即ち、人間が熱さを感じる原因である赤外の中でも皮膚への吸収が高くなる上記波長領域が、上記範囲にあることで、皮膚温の上昇を抑えること25 ができる。

第 5 の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、波長領域 300～2500 nm の日射透過率積分値  $T$  のうち、波長領域 1200～1400 nm の透過率積分値の割合  $T_a$  が 15.0%

以下及び／又は波長領域 1 6 0 0 ~ 1 8 0 0 nm の透過率積分値の割合  $T_c$  が 3.0 % 以下及び／又は波長領域 2 0 0 0 ~ 2 4 0 0 nm の透過率積分値の割合  $T_e$  が 2.0 % 以下である。即ち、人間が熱さを感じる原因である赤外の中でも皮膚の透過性が高くなる上記波長領域が、上記範囲にあることで、上記波長領域の赤外線が皮膚深層の熱を感じる神経末端へ到達することを抑制することができ、熱刺激を抑えることができる。

第 6 の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、波長領域 3 0 0 ~ 2 5 0 0 nm の日射透過率積分値  $T$  のうち、波長領域 1 2 0 0 ~ 1 4 0 0 nm の透過率積分値の割合  $T_a$  が 15.0 % 以下及び／又は波長領域 1 4 0 0 ~ 1 6 0 0 nm の透過率積分値の割合  $T_b$  が 10.0 % 以下及び／又は波長領域 1 6 0 0 ~ 1 8 0 0 nm の透過率積分値の割合  $T_c$  が 3.0 % 以下及び／又は波長領域 1 8 0 0 ~ 2 0 0 0 nm の透過率積分値の割合  $T_d$  が 2.0 % 以下及び／又は波長領域 2 0 0 0 ~ 2 4 0 0 nm の透過率積分値の割合  $T_e$  が 2.0 % 以下である。即ち、人間が熱さを感じる原因である近赤外の中でも皮膚への吸収が高くなる又は皮膚の透過性が高くなる上記波長領域が、上記範囲にあることで、皮膚への赤外線の吸収を減じ、皮膚温の上昇を抑制でき、また、赤外線が皮膚深層の熱を感じる神経末端へ到達することを減じ、熱刺激を抑えることができる。

第 4 の本発明、第 5 の本発明及び第 6 の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1.0 % 以下、可視光透過率が 70 % 以上、かつ、3 0 0 nm ~ 2 1 0 0 nm の波長領域での日射透過率が可視光透過率の 85 % 以下である。これらの性質については第 1 の本発明の合わせガラス用中間膜と同様である。また、厚さについても第 1 の本発明の合わせガラス用中間膜と同様である。

第 7 の本発明は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとし、強度 100 mW/cm<sup>2</sup>、波長 2 9 5 ~ 4 5 0 nm の紫外線を 300 時間照射したときに、

紫外線照射後の合わせガラスの可視光透過率の低下が2.0%以下である合わせガラス用中間膜である。

第7の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとし、強度100mW/cm<sup>2</sup>、波長295～450nmの紫外線を300時間照射したときに、紫外線照射後の合わせガラスの可視光透過率の低下が2.0%以下である。2.0%を超えると、錫ドープ酸化インジウム（以下、ITOともいう）及び／又はポリビニルアセタール樹脂が大きく劣化していることを意味し、中間膜は、光学特性のうち可視光透過率の耐久性が充分でないといえる。

第7の本発明の合わせガラス用中間膜は、通常の中間膜での実績値と、中間膜にITO微粒子を均一に微分散した状態では透過光が青みを呈することを考慮すると、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとし、強度100mW/cm<sup>2</sup>、波長295～450nmの紫外線を300時間照射したときに、上記紫外線照射後の上記合わせガラスのイエローインデックス値の増加が4.0以下であることが好ましい。より好ましくは3.0以下である。更に、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとし、強度100mW/cm<sup>2</sup>、波長295～450nmの紫外線を300時間照射したときに、上記紫外線照射後の上記合わせガラスのCIE1976L\*a\*b\*表色系におけるb\*値の増加が3.0以下であることがより好ましい。更に好ましくは2.0以下である。

なお、上記イエローインデックス値、及び、上記CIE1976L\*a\*b\*表色系におけるb\*値は、可視光透過率の測定における測定データから求めることができる。

第7の本発明の合わせガラス用中間膜が、このような可視光透過率、イエローインデックス値及びCIE1976L\*a\*b\*表色系におけるb\*値等の要件を満たすためには、第7の本発明の合わせガラス用中間膜に用いる可塑化ポリビニ

ルアセタール樹脂組成物は、紫外線吸収剤として、後述するマロン酸エステル系化合物及び／又はシュウ酸アニリド系化合物を含有することが好ましい。

第7の本発明の合わせガラス用中間膜は、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、かつ、300nm～2100nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下であることが好ましい。これらの性質については第1の本発明の合わせガラス用中間膜と同様である。また、厚さについても第1の本発明の合わせガラス用中間膜と同様である。

第1、第2、第3、第4、第5、又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜はまた、300～2100nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下であることが好ましい。

第1、第2、第3、第4、第5、又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜としては特に限定されないが、例えば、可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜であって、上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部、可塑剤20～60重量部、並びに、錫ドープ酸化インジウム(ITO)微粒子、アンチモンドープ酸化錫ATO)微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛(AZO)微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛IZO)微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種の微粒子0.1～3重量部を含有するものであり、上記微粒子は、平均粒径が80nm以下であり、かつ、粒径100nm以上の粒子が1個/μm<sup>2</sup>以下に分散しているものであるもの；可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜であって、上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部、可塑剤20～60重量部、並びに、ジイモニウム系色素、アミニウム系色素、フタロシアニン系色素、アントラキノン系色素、ポリメチレン系色素、ベンゼンジチオール型アンモニウム系化合物、チオ尿素誘導体及びチオール金属錯体からなる群より選択される

少なくとも1種の化合物0.00001～5重量部を含有するものであり、上記化合物は、前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物中に均一に分散しているものであるもの；可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜であって、上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部、可塑剤20～60重量部、錫ドープ酸化インジウム（ITO）微粒子、アンチモンドープ酸化錫（ATO）微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛（AZO）微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛（IZO）微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種の微粒子

10 0.1～3重量部、並びに、ジイモニウム系色素、アミニウム系色素、フタロシアニン系色素、アントラキノン系色素、ポリメチン系色素、ベンゼンジチオール型アンモニウム系化合物、チオ尿素誘導体及びチオール金属錯体からなる群より選択される少なくとも1種の化合物0.00001～5重量部を含有するものであり、上記微粒子は、平均粒径が80nm以下であり、かつ、粒径100nm以上の粒子が1個/μm<sup>2</sup>以下に分散しているものであり、上記化合物は、前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物中に均一に分散しているもの等が挙げられる。このような構成の合わせガラス用中間膜は、上述の第1、第2、第3、第4、第5、又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜の性能を満たし得る。

15 上記ポリビニルアセタール樹脂としては特に限定されず、従来より安全ガラス用中間膜用樹脂として用いられているものを使用することができ、例えば、アセタール化度60～75モル%、重合度800～3000のもの等が好適に用いられる。重合度が800未満であると、樹脂膜の強度が弱くなりすぎて得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、重合度が3000を超えると、樹脂膜の成形性が難しくなったり、樹脂膜の強度が強くなりすぎて得られる合わせガラスの衝撃吸収性が低下したりすることがある。なかでも、ガラスに対する適正な接着力、透明性、耐候性に優れるという点からポリビニルブチラール樹脂が好適である。

上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール化することにより得ることができる。上記ポリビニルアルコールは、通常ポリ酢酸ビニルを鹼化することにより得られ、鹼化度80～99.8モル%のポリビニルアルコールが一般的に用いられる。

5 上記ポリビニルアルコール樹脂の粘度平均重合度は200～3000であることが好ましい。200未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、3000を超えると、樹脂膜の成形性が悪くなり、樹脂膜の剛性が大きくなり過ぎ、加工性が悪くなることがある。より好ましくは500～2000である。なお、ポリビニルアルコール樹脂の粘度平均重合度及び鹼化度は、

10 例え、JIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。

上記アルデヒドとしては特に限定されず、一般に、炭素数が1～10のアルデヒドが用いられ、例えば、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、n-バレルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-オクチルアルデヒド、n-ノニルアルデヒド、n-デシルアルデヒド、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、n-ブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-バレルアルデヒドが好適に用いられる。特に好ましくは炭素数が4のブチルアルデヒドである。

上記可塑剤としては通常ポリビニルアセタール樹脂に使用されるものであれば

20 特に限定されず、中間膜用の可塑剤として一般的に用いられている公知の可塑剤を用いることができ、例えば、一塩基性有機酸エステル、多塩基性有機酸エステル等の有機系可塑剤；有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤等が挙げられる。これらの可塑剤は、単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよく、樹脂との相溶性等を考慮して、ポリビニルアセタール樹脂の種類に応じて使い分けられる。

上記一塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール又はトリプロピレングリコール等のグリコールと、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプチル酸、n-オクチル酸、2-エチルヘキシル酸、ペラルゴン酸（n-ノニル酸）又はデ

シル酸等の一塩基性有機酸との反応によって得られるグリコール系エステルが挙げられる。なかでも、トリエチレングリコールージカブロン酸エステル、トリエチレングリコールージー2-エチル酪酸エステル、トリエチレングリコールージー $n$ -オクチル酸エステル、トリエチレングリコールージー2-エチルヘキシリ5酸エステル等のトリエチレングリコールの一塩基性有機酸エステルが好適に用いられる。

上記多塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、アジピン酸、セバシン酸又はアゼライン酸等の多塩基性有機酸と、炭素数4～8の直鎖状又は分枝状アルコールとのエステル等が挙げられる。なかでも、ジブチルセ10バシン酸エステル、ジオクチルアゼライン酸エステル、ジブチルカルビトールアジピン酸エステル等が好適に用いられる。

上記有機リン酸系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリプトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

15 上記可塑剤としては、なかでも、トリエチレングリコールージエチルブチラート、トリエチレングリコールージエチルヘキソエート、トリエチレングリコールージブチルセバケート等が好適に用いられる。

上記可塑剤の配合量は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して20～60重量部であることが好ましい。20重量部未満であると、得られる中間膜20や合わせガラスの衝撃吸収性が不充分となることがあり、60重量部を超えると、可塑剤がブリードアウトして得られる中間膜や合わせガラスの光学歪みが大きくなったり、透明性やガラスと中間膜との接着性等が損なわれたりすることがある。より好ましくは30～50重量部である。

上記錫ドープ酸化インジウム(ITO)微粒子、アンチモンドープ酸化錫(A25TO)微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛(AZO)微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛(IZO)微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種の微粒子は、本発明の合わせガラス用中間膜に遮熱性を付与するために配合されるものである。これらの微粒子は優れた赤外線(熱線)遮

蔽機能を有するので、得られる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスは優れた遮熱性を発現する。

上記微粒子の平均粒子径は 80 nm 以下であることが好ましい。80 nm を超えると、微粒子による可視光線の散乱が顕著になり、得られる中間膜の透明性が  
5 損なわれることがある。その結果、合わせガラスとしたときにヘイズが悪化して、例えば自動車のフロントガラスで要求されるような高度な透明性を満足することができなくなる。より好ましくは 10 ~ 80 nm である。なお、上記微粒子の粒子径は、光散乱測定装置（例えば、大塚電子社製「DLS-6000AL」）を使用して、Ar レーザーを光源として動的光散乱法により測定することができる。  
10 上記微粒子は、中間膜中に均一に微分散されていることが好ましい。均一に微分散させることにより、合わせガラスとしたときに、低ヘイズで透明性に優れるとともに、遮熱性は中間膜全体にわたって高いものとなり、更に、ガラスと中間膜との接着力が調節可能であることにより、耐貫通性も優れたものとなる。

本発明の合わせガラス用中間膜においては、上記微粒子は、粒子径 100 nm 以上 の粒子が 1 個 /  $\mu m^2$  以下に分散していることが好ましい。即ち、透過型電子顕微鏡で本発明の中間膜を撮影、観察したときに、粒子径 100  $\mu m$  以上の上記微粒子が観察されないか、又は、観察された場合には 1  $\mu m^2$  の枠の中心に粒子径 100  $\mu m$  以上の上記微粒子を置くと、かかる 1  $\mu m^2$  の枠内に粒子径 100  $\mu m$  以上の微粒子が他に観察されない状態となるよう分散している。これにより、合わせガラスにしたときに、低ヘイズで透明性に優れ、中間膜全体に渡って高い遮熱性が得られる。なお、透過型電子顕微鏡による観察は、日立製作所社製 H-7100FA 型透過型電子顕微鏡を用いて、加速電圧 100 kV で撮影することにより行うことができる。

上記微粒子の配合量は、ポリビニルアセタール樹脂 100 重量部に対して 0. 1 ~ 3 重量部であることが好ましい。0. 1 重量部未満であると、赤外線遮蔽効果が充分に発揮されず得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの遮熱性が充分に向上しないことがあり、3 重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズが大きくなったりす

る。

上記ジイモニウム系色素、アミニウム系色素、フタロシアニン系色素、アントラキノン系色素、ポリメチン系色素、ベンゼンジチオール型アンモニウム系化合物、チオ尿素誘導体及びチオール金属錯体からなる群より選択される少なくとも  
5 1種の化合物は、本発明の合わせガラス用中間膜に遮熱性を付与するために配合されるものである。これらの化合物は優れた赤外線（熱線）遮蔽機能を有するので、得られる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスは優れた遮熱性を発現する。

上記化合物は、上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物中に均一に分散していることが好ましい。上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物中に均一に分散していることにより、合わせガラスとしたときに、低ヘイズで透明性に優れるとともに、遮熱性は中間膜全体にわたって高いものとなり、更に、ガラスと中間膜との接着力が調節可能であることにより、耐貫通性も優れたものとなる。  
10

上記化合物の配合量は、ポリビニルアセタール樹脂 100 重量部に対して 0. 00001 ~ 5 重量部であることが好ましい。0. 00001 重量部未満である  
15 と、赤外線遮蔽効果が充分に発揮されず得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの遮熱性が充分に向上しないことがあり、5 重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズが大きくなったりする。より好ましくは 0. 0001 ~ 4 重量部であり、更に好ましくは 0. 001 ~ 3 重量部である。

20 上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に、紫外線吸収剤として、マロン酸エステル系化合物及び／又はシュウ酸アニリド系化合物を含有することが好ましい。従来の合わせガラス用中間膜では、主にベンゾトリアゾール系化合物等の紫外線吸収剤が用いられていた。しかし、本発明者らは、鋭意検討の結果、これらの紫外線吸収剤の吸収は可視光領域にかかっており、添加した時点で既に  
25 中間膜を黄色に着色してしまうこと；紫外線吸収剤が反応性を持つフェノール系のOH基等の官能基を有しているために、インジウム・錫等の重金属との錯体形成の要因となり、錯体が黄色く着色して可視光透過率を低下させること；上記微粒子が中間膜の耐久性に大きな影響を与えており、従来の紫外線吸収剤では、錫ドープ酸化インジウム微粒子等の微粒子分散系に適していないために、錫ドープ

酸化インジウム微粒子等の還元が周辺マトリクス樹脂の酸化を招いたり、錫ドープ酸化インジウム微粒子等の酸化が黄色着色の原因となったりすることを見出した。本発明者等は、更に鋭意検討の結果、紫外線吸収剤としてマロン酸エステル系化合物及び／又はシュウ酸アニリド系化合物を選択することにより、ポリビニルアセタール樹脂とITO微粒子等とを含有する中間膜が優れた可視光透過率、イエローインデックス値及びCIE 1976 L\*a\*b\*表色系におけるb\*値等を発現でき、かつ、紫外線照射後にもこれらの値の変化が小さいことを見出した。

上記マロン酸エステル系化合物としては特に限定されず、例えば、マロン酸〔(4-メトキシフェニル)メチレン〕ジメチルエステル(Clariant社製、Hostavin PR-25)等が挙げられる。上記シュウ酸アニリド系化合物としては特に限定されず、例えば、2-エチル2'-エトキシオキサルアニリド(Clariant社製、Sanduvor VSU)等が挙げられる。

上記紫外線吸収剤としてマロン酸系化合物及び／又はシュウ酸アニリド系化合物等を含有することにより、熱や光(特に紫外線領域)等のエネルギーによりITO微粒子等自体や分散安定剤が化学変化を起こしたり、それが周辺のポリビニルアセタール樹脂マトリクスにまで影響を与えることを抑制できる。従つて、高い耐候性を本発明の中間膜に付与することができる。

上記マロン酸系化合物及びシュウ酸アニリド系化合物等は、UV-B領域において強い吸収を示すので、種々の樹脂の劣化を引き起こす300～320 nmの波長の紫外線から樹脂を保護するのに適しており、本発明の中間膜の耐候性及び耐光性を改善することができる。また、マロン酸系化合物及びシュウ酸アニリド系化合物等の吸収域は可視光と重ならないので、着色を引き起こすこともない。更に、モル吸光度が非常に高く、分子量が小さいので、同じ含有量での紫外線の吸収量が従来の紫外線吸収剤よりもはるかに高く、紫外線吸収剤の含有量を減らし、コストダウンを図ることができる。

上記マロン酸系化合物及びシュウ酸アニリド系化合物等は、重金属との錯体形成の要因となりうるOH基等の官能基を有していないため、インジウム・錫等の金属を含有する本発明の中間膜を作製する際の混合時や耐久性試験でのエネルギー

一印加によっても錯体を形成することがなく、錯体形成による黄色着色や黄変が起りにくく、可視光透過率の低下を抑制できる。

上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に、紫外線吸収剤として、マロン酸エステル系化合物及び／又はシュウ酸アニリド系化合物と、ベンゾトリ  
5 アゾール系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物、ベンゾエー  
ト系化合物、及び、ヒンダードアミン系化合物からなる群より選択される少なく  
とも1種との混合物を含有してもよい。

上記ベンゾトリアゾール系化合物としては特に限定されず、例えば、2-(2  
'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール(チバガイギー社  
10 製、Tinuvin P)、2-(2'-ヒドロキシ-3'、5'-ジ-*t*-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール(チバガイギー社製、Tinuvin 320)、  
2-(2'-ヒドロキシ-3'-*t*-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール(チバガイギー社製、Tinuvin 326)、2-(  
2'-ヒドロキシ-3'、5'-ジ-アミルフェニル)ベンゾトリアゾール(チ  
15 バガイギー社製、Tinuvin 328)等が挙げられる。

上記ベンゾフェノン系化合物としては特に限定されず、例えば、オクタベンゾン(チバガイギー社製、Chimassorb 81)等が挙げられる。

上記トリアジン系化合物としては特に限定されず、例えば、2-(4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン-2-イル)-5-[  
20 (ヘキシル)オキシ]-1-フェノール(チバガイギー社製、Tinuvin 1577 FF)等が挙げられる。

上記ベンゾエート系化合物としては特に限定されず、例えば、2, 4-ジ-*t*-エチル-1-ブチルフェニル-3, 5-ジ-*t*-エチル-1-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート(チバガイギー社製、Tinuvin 120)等が挙げられる。

25 上記ヒンダードアミン系化合物としては特に限定されず、例えば、LA-57(アデカアーガス社製)等が挙げられる。

上記紫外線吸収剤の含有量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部  
に対して0.01～5.0重量部であることが好ましい。0.01重量部未満であると、紫外線吸収の効果がほとんど得られないことがあり、5.0重量部を超

えると、かえって樹脂の耐候劣化を引き起こすことがある。より好ましくは0.05～1.0重量部である。

上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に、接着力調整剤として有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩、又は、変成シリコーンオイルを含有することが好ましい。

上記有機酸としては特に限定されず、例えば、オクチル酸、ヘキシル酸、酪酸、酢酸、蟻酸等のカルボン酸等が挙げられる。上記無機酸としては特に限定されず、例えば、塩酸、硝酸等が挙げられる。上記アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩としては特に限定されず、例えば、カリウム、ナトリウム、マグネシウム等の塩が挙げられる。

上記有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩のなかでも、炭素数2～16の有機酸のアルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩が好ましく、より好ましくは、炭素数2～16のカルボン酸のカリウム塩及びマグネシウム塩である。上記炭素数2～16のカルボン酸のカリウム塩及びマグネシウム塩としては特に限定されないが、例えば、酢酸マグネシウム、酢酸カリウム、プロピオン酸マグネシウム、プロピオン酸カリウム、2-エチルブタン酸マグネシウム、2-エチルブタン酸カリウム、2-エチルヘキサン酸マグネシウム、2-エチルヘキサン酸カリウム等が好適に用いられる。これらは単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

上記接着力調整剤が有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩である場合、接着力調整剤の含有量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.0001～1.0重量部であることが好ましい。0.0001重量部未満であると、高湿度雰囲気下で中間膜周辺部の接着力が低下することがあり、1.0重量部を超えると、接着力が低くなりすぎるうえに中間膜の透明性が失われることがある。より好ましくは0.001～0.5重量部であり、更に好ましくは0.01～0.2重量部である。

上記変成シリコーンオイルとしては特に限定されず、例えば、エポキシ変成シリコーンオイル、エーテル変性シリコーンオイル、エステル変性シリコーンオイル、アミン変性シリコーンオイル、カルボキシル変性シリコーンオイル等が挙げ

られる。これらは、単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。なお、これらの変性シリコーンオイルは、一般にポリシロキサンに変性すべき化合物を反応させることにより得られる。

上記変性シリコーンオイルの分子量は800～5000であることが好ましい。  
5 800未満であると、中間膜表面への局在化が不充分なことがあり、5000を超えると、樹脂との相溶性が低下し、膜表面にプリードアウトしてガラスとの接着力が低下することがある。より好ましくは1500～4000である。

上記接着力調整剤が変性シリコーンオイルである場合、接着力調整剤の含有量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.01～0.2重量部であることが好ましい。0.01重量部未満であると、吸湿による白化を防止する効果が不充分となることがあり、0.2重量部を超えると、樹脂との相溶性が低下し、膜表面にプリードアウトして樹脂とガラスとの接着力が低下することがある。より好ましくは0.03～0.1重量部である。

上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、上記ITO微粒子等を中間膜中に微細に均一分散するために、更に、分散安定剤を含有することが好ましい。上記分散安定剤としては特に限定されないが、例えば、一般的に無機微粒子の分散安定剤として用いられる有機・無機界面活性剤等が挙げられ、例えば、硫酸系エステル化合物、リン酸エステル系化合物、リシノール酸、ポリリシノール酸、ポリカルボン酸、多価アルコール型界面活性剤、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラールからなる群より選択される少なくとも1種が好適に用いられる。

上記分散安定剤の含有量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.0005～5.0重量部であることが好ましい。0.0005重量部未満であると、ほとんど分散安定剤による効果が得られず、5.0重量部を超えると、中間膜の製膜時に発泡したり、合わせガラスにした際に、発泡を生じたり、25 中間膜とガラスとの接着力が上がりすぎることがある。より好ましくはITO微粒子等1.0重量部に対して0.05～1.0重量部である。

上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に、酸化防止剤を含有することが好ましい。上記酸化防止剤は、押出機中での熱による中間膜組成物の変質を防止するために用いられる。

上記酸化防止剤としては特に限定されず、フェノール系のものとしては、例えば、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-クレゾール (BHT) (住友化学社製、スミライダーBHT)、テトラキス-[メチレン-3-(3'-5'-ジ-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン (チバガイギー社製、イルガノックス1010) 等が挙げられる。

上記酸化防止剤の含有量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.01~5.0重量部であることが好ましい。

上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に必要に応じて、光安定剤、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、耐湿剤、熱線反射剤、熱線吸収剤等の添加剤を含有してもよい。

本発明の合わせガラス用中間膜を作製する方法としては特に限定されないが、例えば、ITO微粒子等を有機溶媒中に均一分散させた分散液を、ポリビニルアセタール樹脂に添加して混練する方法等により作製することができる。

上記分散に用いる主分散媒としては特に限定されず、例えば、使用される可塑剤と同種の可塑剤、上記分散安定剤等が挙げられ、なかでも、使用される可塑剤と同種の可塑剤が好適に用いられる。

ITO微粒子等と有機溶媒とを混合する装置としては特に限定されず、例えば、遊星式攪拌装置、湿式メカノケミカル装置、ヘンシェルミキサー、ホモジナイザー、超音波照射機等が一般的に用いられる。

上記混練に用いられる装置としては特に限定されず、例えば、押出機、プラスチグラフ、ニーダー、パンバリーミキサー、カレンダーロール等が挙げられる。なかでも、連続的に生産するという観点から、押出機が好ましい。

上記混練の際には、混練物中にキレート剤及び/又は少なくとも1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物が添加されていることにより、得られる合わせガラスのヘイズを更に良化させることができる。上記キレート剤は、ITO微粒子等に配位してITO微粒子等の凝集を防ぐ作用により、上記1つ以上のカルボキシル基を有する化合物は、高い分散能を有しITO微粒子等を均一に分散する作用により、ヘイズを良化させることができると考えられる。

上記キレート剤としては特に限定されず、例えば、EDTA類及びβ-ジケト

ン類等が挙げられる。なかでも、 $\beta$ -ージケトン類は、可塑剤や樹脂との相容性のよいことから好ましく、特にアセチルアセトンが好適である。アセチルアセトン以外にもベンゾイルトリフルオロアセトンやジピバロイルメタン等を用いてもよい。

5 上記キレート剤の配合量としては、混練物中のITO微粒子等1.0重量部に対して0.001~2重量部であることが好ましい。0.001重量部未満であると、効果が期待できないことがあり、2重量部を超えると、製膜時及び合わせガラス作製時に発泡を生じることがある。より好ましくは0.01~1重量部である。

10 上記1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物としては特に限定されず、例えば、脂肪族カルボン酸、脂肪族ジカルボン酸、芳香族カルボン酸、芳香族ジカルボン酸、ヒドロキシ酸等が挙げられ、より具体的には、安息香酸、フタル酸、サリチル酸、リシノール酸等が挙げられる。なかでも、炭素数2~18の脂肪族カルボン酸が好ましく、より好ましくは炭素数2~10の脂肪族カルボン酸である。具体的には、例えば、酢酸、プロピオン酸、n-酪酸、2エチル酪酸、n-ヘキサン酸、2エチルヘキサン酸、n-オクタン酸等が挙げられる。

15 上記1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物の配合量としては、混練物中のITO微粒子等1.0重量部に対して0.001~2重量部であることが好ましい。0.001重量部未満であると、効果が期待できないことがあり、2重量部を超えると、中間膜が黄変することがあり、また、ガラスと中間膜との接着力を損なうことがある。より好ましくは0.01~1重量部である。

20 本発明の合わせガラス用中間膜を成形する方法としては特に限定されず、例えば、押し出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によりシート状に製膜する方法が挙げられる。なかでも、2軸同方向による押し出し法が好ましく、

25 ヘイズを更に良化させることができる。

第8の本発明は、第1、第2、第3、第4、第5、又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスである。

第8の本発明の合わせガラスに使用するガラスとしては特に限定されず一般に使用されている透明板ガラスを使用することができ、例えば、フロート板ガラス、

磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス、着色された板ガラス、熱線吸収ガラス等の各種無機ガラス；ポリカーボネート板；ポリメチルメタクリレート板等の有機ガラス等が挙げられる。これらのガラスは、単独で用いられてもよいし、2種類以上が併用されてもよい。なかでも、熱線吸収ガラスを

5 用いることが好ましい。

上記熱線吸収ガラスとしては特に限定されないが、なかでもグリーンガラスが好適である。また、上記熱線吸収ガラスのなかでも、可視光透過率75%以上、波長領域900～1300nmにおいて透過率が65%以下である熱線吸収ガラスを用いれば、ITO微粒子の赤外線カット性が1300nmより長波長側で大きく、900～1300nmの領域では比較的小さいことから、同じ可視光線透過率に対しても日射透過率を低くすることができ、日射カット率を向上させることができる。

10

上記熱線吸収ガラスは、中間膜を挟み込む1対のガラスのうち、両側に用いてもよいし、片側のみに用いてもよい。

15 また、上記ガラスの厚みとしては、用途によって適宜選択されれば良く、特に限定されるものではない。

第8の本発明の合わせガラスは、本発明の合わせガラス用中間膜を使用して、従来公知の方法により製造することができる。

第8の本発明の合わせガラスには、本発明の中間膜とプラスチックフィルムとを組み合わせたものも含まれる。具体的には、例えば、本発明の中間膜と金属コーティング層を持たないプラスチックフィルムとを組み合わせたもの等が挙げられる。

20

第8の本発明の合わせガラスは、本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなることにより、熱線カット機能を得ることができ、金属コーティング層を持たないことにより、電磁波透過性を確保することができ、更にプラスチックフィルムからなることにより、防犯性、耐貫通性が向上する。

25

第8の本発明の合わせガラスの用途としては特に限定されず、例えば、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス、ルーフガラス；航空機や電車等

の乗り物のガラス部位、建築用ガラス等が挙げられる。

第9の本発明は、第1、第2、第3、第4、第5、又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜又は第8の本発明の合わせガラスを用いてなることを特徴とする車両用窓材料である。また、第9の本発明の車両用窓材料を用いてなる車両もまた、本発明の1つである。

第10の本発明は、第1、第2、第3、第4、第5、又は第7の本発明の合わせガラス用中間膜又は第8の本発明の合わせガラスを用いてなることを特徴とする建築用材料である。また、第10の本発明の建築用材料を用いてなる建築物もまた、本発明の1つである。

10

#### 発明を実施するための最良の形態

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

15 (実施例1)

##### (1) ポリビニルブチラールの合成

純水2890重量部に、平均重合度1700、鹼化度99.2モル%のポリビニルアルコール275重量部を加えて加熱溶解した。この反応系を15℃に温度調節し、35重量%の塩酸201重量部とn-ブチルアルデヒド157重量部を加え、この温度を保持して反応物を析出させた。その後、反応系を60℃で3時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を汎用な中和剤である水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で2時間水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルブチラール樹脂を得た。この樹脂の平均ブチラール化度は68.5モル%であった。

25 (2) 热線吸収剤分散可塑剤の作製

トリエチレングリコールージーエチレンブチレート(3GO)40重量部に対しITO微粒子を1重量部仕込み、分散剤としてポリリン酸エステル塩を用い、水平型のマイクロビーズミルにて可塑剤中にITO微粒子を分散させた。その後、

当該分散液にアセチルアセトン0.1重量部を攪拌下で添加し、熱線吸収剤分散可塑剤を作製した。分散液中のITO微粒子の平均粒径は35nmであった。

(3) 合わせガラス用中間膜の製造

得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に対し、熱線吸収剤分散可塑剤を40重量部、更に全系に対してMg含有量が60ppmとなるように2-エチル酛酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150°Cで30分間プレス成形し、平均膜厚0.76mmの中間膜を得た。膜中のITO微粒子の平均粒径は56nmであり、粒径が100nm以上の粒子は観察されなかった。

10 (4) 合わせガラスの製造

得られた合わせガラス用中間膜を、その両端から透明なフロートガラス(縦30cm×横30cm×厚さ2.5mm)で挟み込み、これをゴムバック内に入れ、2.6kPaの真圧度で20分間脱気した後、脱気したままオープンに移し、更に90°Cで30分間保持しつつ真圧プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスをオートクレーブ中で135°C、圧力1.2MPaの条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

得られた合わせガラスにつき、下記の方法により、可視光透過率(Tv)、日射透過率(Ts)、ヘイズ(H)、誘電率、電磁波透過性(ΔdB)及びパンメル値を測定した。その結果を表2に示した。

(可視光透過率(Tv)及び日射透過率(Ts)の測定)

直記分光光度計(島津製作所社製「UV3100」)を使用して、合わせガラスの300~2500nmの透過率を測定し、JIS Z 8722及びJIS R 3106に従って、380~780nmの可視光透過率(Tv)及び300~2500nmの日射透過率(Ts)を求めた。

(ヘイズ(H)の測定)

J I S K 6 7 1 4 に準拠して測定した。

(誘電率の測定)

測定装置としてRF (Radio Frequency) Impedance  
 5 /material analyzer (ヒーレットパッカード社製「4291B」、測定可能領域: 1 MHz ~ 1. 86 GHz) を使用し、サンプル固定装置としてDielectric Material Test Fixture (ヒーレットパッカード社製「16453A」) を使用して、中間膜サンプルを電極間に挟んで (サンプル固定装置によりサンプルを厚み一定で保持) 交流電圧  
 10 を印加し、1 MHz ~ 1. 86 GHz の周波数領域で測定した。

なお、Reference Material としてポリテトラフルオロエチレン ( $\epsilon = 2.1$ 、 $\epsilon' = 2.1$ 、 $\tan \delta = 0$  ( $\epsilon' = 0$ )) を使用した。

(電磁波シールド性 ( $\Delta dB$ ) の測定)

15 KEC法測定 (近傍界の電磁波シールド効果測定) によって、0. 1 ~ 10 MHz の範囲の反射損失値 (dB) を通常の板厚 2. 5 mm のフロートガラス単板と比較し、上記周波数での差の最小・最大値を記載した。

また、2 ~ 26. 5 GHz の範囲の反射損失値 (dB) は、送信受信用の1対のアンテナ間にサンプル 600 mm 角を立て、電波信号発生装置からの電波をス  
 20 ペクトルアナライザーで受信し、そのサンプルの電磁波シールド性を評価した (遠方界の電磁波測定法)。

(パンメル値の測定)

25 合わせガラスを  $-18 \pm 0.6^\circ\text{C}$  の温度に 16 時間放置して調整し、これを頭部が 0. 45 kg のハンマーで打ってガラスの粒径が 6 mm 以下になるまで粉碎した。ガラスが部分剥離した後の膜の露出度をあらかじめグレード付けした限度見本で判定し、その結果を表 1 に従いパンメル値として表した。

なお、パンメル値は、中間膜のガラスに対する接着性を評価する値であり、パ

ンメル値が大きいほどガラスとの接着力も大きい。

表 1

5

10

中間膜の露出度(%)	パンメル値
100	0
90	1
85	2
60	3
40	4
20	5
100	6
5	7
2以下	8

## (実施例 2)

熱線吸収剤分散可塑剤中のITOを1重量部から1.6重量部に変更したこ  
15 と以外は実施例1と同様にして合わせガラスを作製した後、実施例1と同様の測  
定を行い、その結果を表2に示した。

## (実施例 3)

熱線吸収剤分散可塑剤中のITOを1重量部から2.8重量部に変更したこ  
20 と以外は実施例1と同様にして合わせガラスを作製した後、実施例1と同様の測  
定を行い、その結果を表2に示した。

## (実施例 4)

平均厚み0.38mmの中間膜2枚の間に、厚み50μmの透明なPET製の  
25 フィルムを挟み込んだこと以外は、実施例2と同様にして合わせガラスを作製し  
た後、実施例1と同様の測定を行い、その結果を表2に示した。

## (比較例 1)

ITO、分散剤及びアセチルアセトンを全く添加しなかつたこと以外は、実

施例 1 と同様にして合わせガラスを作製した後、実施例 1 と同様の測定を行い、その結果を表 2 に示した。

(比較例 2)

5 ITOを全く配合しない通常の中間膜（平均厚さ0.38mm）を用いて合わせガラスを作製する際に、フロートガラスの1枚を熱反ガラスとしたこと以外は、実施例 1 と同様にして合わせガラスを作製した後、実施例 1 と同様の測定を行い、その結果を表 2 に示した。

10 (比較例 3)

ITOを全く配合しない通常の中間膜（平均厚さ0.38mm）2枚で熱反コーティングされたPET（ポリエチレンテレフタレート）板を挟み込み、更に両側から透明なフロートガラスを挟んで合わせガラスを作製した後、実施例 1 と同様の測定を行い、その結果を表 2 に示した。なお、熱反コーティングにより電

15 磁波がシールドされるため、電磁波透過性の測定は行わなかった。

(比較例 4)

ITOの配合量を0.03重量部としたこと以外は、実施例 1 と同様にして合わせガラスを作製した後、実施例 1 と同様の測定を行い、その結果を表 2 に示

20 した。

(比較例 5)

ITOの配合量を3.6重量部としたこと以外は、実施例 1 と同様にして合わせガラスを作製した後、実施例 1 と同様の測定を行い、その結果を表 2 に示

25 した。

表 2

5  
10  
15  
20  
25

	T <sub>v</sub> (%)	T <sub>s</sub> (%)	H(%)	誘電率				電磁シールド性 (△dB)	パンメル値
				1MHz	10MHz	100MHz	1GHz		
実施例1	83	56	0.7	3.90	3.55	3.20	2.85	2.75	0~1
実施例2	80	48	0.6	3.95	3.60	3.25	2.90	2.77	0~1
実施例3	76	44	0.9	3.98	3.65	3.29	2.94	2.80	0~1
実施例4	79	46	0.6	3.40	3.15	2.76	2.41	2.29	0~1
比較例1	89	81	0.4	3.50	3.20	2.80	2.57	2.45	0~1
比較例2	80	47	0.6	測定不能				15~48	1
比較例3	78	47	0.7	測定不能				13~37	1
比較例4	89	75	0.5	3.70	3.38	2.96	2.70	2.57	0~1
比較例5	70	35	1.9	4.10	3.73	3.39	3.00	2.88	0~1

## (実施例 5)

## (1) ポリビニルブチラールの合成

純水 2890 g に、平均重合度 1700、鹼化度 99.2 モル%のポリビニルアルコール 275 g を加えて加熱溶解した。この溶解液を 15 °C に温度調節し、5 濃度 35 重量%の塩酸 201 g と n-ブチルアルデヒド 157 g とを加え、15 °C を保持して反応物を析出させた。次いで、反応系を 60 °C で 3 時間保持して反応を完了させた後、過剰の水で洗浄して未反応の n-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を汎用な中和剤である水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で 2 時間水洗後、乾燥して、白色粉末状のポリビニルブチラール樹脂を得た。このポリビニルブチラール樹脂の平均ブチラール化度は 68.5 モル% であった。

## (2) 热線吸収剤分散可塑剤の作製

トリエチレングリコールージーエチレンブチレート (3GO) 40 重量部に対し、ITO 粉末（三菱マテリアル社製）1 重量部と、分散剤としてポリリン酸エ15 ステル塩 0.1 重量部とを添加し、水平型のマイクロビーズミルにて、可塑剤中に ITO 微粒子を分散させた。次いで、この溶液を攪拌しながら、アセチルアセトン 0.1 重量部を添加し、熱線吸収剤分散可塑剤を作製した。

## (3) 合わせガラス用中間膜の製造

ポリビニルブチラール樹脂 100 重量部に対して、熱線吸収剤分散可塑剤 40 重量部、及び、全系に対してマグネシウム含有量が 60 ppm となるよう 2-エチル酛酸マグネシウム適量を添加し、これをミキシングロールで充分に混練した後、プレス成形機を用いて 150 °C で 30 分間プレス成形し、平均膜厚 0.76 mm の中間膜を得た。この中間膜中の ITO 微粒子の平均粒子径は 56 nm であり、粒子径 100 nm 以上の粒子は観察されなかった。

## (4) 合わせガラスの製造

得られた中間膜を、その両端から 30 cm × 30 cm × 厚さ 2.5 mm の透明な 2 枚のフロートガラスで挟み込み、これをゴムバック内に入れ、2660 Pa の真空度で 20 分間脱気した後、脱気したままオープンに移し、更に 90 °C で 3

0分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスをオートクレーブ中で135°C、圧力118N/cm<sup>2</sup>の条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

5 (実施例6)

ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を1.6重量部としたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

(実施例7)

10 ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を2.8重量部としたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

(実施例8)

15 ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を0.7重量部とし、透明な2枚のフロートガラスを用いる代りに、2枚のグリーンガラスを用いたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

(実施例9)

20 ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を0.7重量部とし、透明な2枚のフロートガラスを用いる代りに、1枚のグリーンガラスと1枚の高熱線吸収ガラスとの組み合わせを用いたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

(実施例10)

25 トリエチレングリコールジーエチレンブチレート（3GO）40重量部に対し、ITO粉末（三菱マテリアル社製）0.3重量部と、ジイモニウム系色素（日本化薬社製、IRG-022ITO）0.015重量部と、分散剤としてポリリン酸エステル塩0.1重量部とを添加し、水平型のマイクロビーズミルにて、

可塑剤中にITO微粒子及びジイモニウム系色素を分散させ、この溶液を攪拌しながら、アセチルアセトン0.1重量部を添加して熱線吸収剤分散可塑剤を作製したこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

5 (実施例11)

トリエチレングリコールージーエチレンブチレート(3GO)40重量部に対し、ITO粉末(三菱マテリアル社製)1重量部と、ジイモニウム系色素(日本化薬社製、IRG-022ITO)0.015重量部と、分散剤としてポリリン酸エステル塩0.1重量部とを添加し、水平型のマイクロビーズミルにて、可塑剤中にITO微粒子及びジイモニウム系色素を分散させ、この溶液を攪拌しながら、アセチルアセトン0.1重量部を添加して熱線吸収剤分散可塑剤を作製したこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

(比較例6)

15 ITO粉末、分散剤、及び、アセチルアセトンを添加しなかったこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

(比較例7)

20 ITO粉末を添加しなかったこと、及び、透明な2枚のフロートガラスを用いる代りに、透明な1枚のフロートガラスと1枚の熱線反射ガラスとの組み合わせを用いたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

(比較例8)

25 平均膜厚0.76mmの中間膜を用いる代りに、ITO粉末を添加せずに実施例1と同様にして作製された2枚の平均膜厚0.38mmの中間膜により熱線反射コーティングされたPETを挟み込んでなる中間膜を用いたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

## (比較例 9)

ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を0.03重量部としたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

## 5 (比較例 10)

ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を3.6重量部としたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

## (比較例 11)

10 ITO粉末、分散剤、アセチルアセトンを添加しなかったこと、及び、透明な2枚のフロートガラスを用いる代りに2枚のグリーンガラスを用いたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

## (比較例 12)

15 ITO粉末、分散剤、及び、アセチルアセトンを添加しなかったこと、及び、透明な2枚のフロートガラスを用いる代りに、1枚のグリーンガラスと1枚の高熱線吸収ガラスとの組み合わせを用いたこと以外は実施例5と同様にして合わせガラスを作製した。

20 実施例5～11及び比較例6～12で作製された合わせガラスについて、実施例1と同様の方法により可視光透過率（Tv）、日射透過率（Ts）、ヘイズ（H）、パンメル値を測定した。また、下記の方法により、波長領域780～1500nmの近赤外線領域の透過率及び波長領域1500～2100nmの中赤外線領域の透過率を測定した。更に、下記に方法により透過率積分値を測定した。

25 結果を表3に示した。

## (近赤外線領域及び中赤外線領域の透過率の測定)

波長領域780～1500nmの近赤外線領域の透過率「近赤外透過率」 $T_n$

、及び、波長領域 1 5 0 0 ~ 2 1 0 0 nm の中赤外線領域の透過率「中赤外線透過率」  $T_{m,i,r}$  を J I S Z E 7 2 2 及び J I S R 3 1 0 6 記載の重価係数を用い、規格化することにより求めた。

5 (透過率積分値 (T a, T b, T c, T d, T e) の測定)

直記分光光度計（商品名「UV 3 1 0 0」、島津製作所社製）を使用し、日射透過率波長領域（3 0 0 ~ 2 5 0 0 nm）の光線透過率の積分値を求めた (T)。また、同方法で各波長領域の積分値 (T a : 1 2 0 0 ~ 1 4 0 0 nm、T b : 1 4 0 0 ~ 1 6 0 0 nm、T c : 1 6 0 0 ~ 1 8 0 0 nm、T d : 1 8 0 0 ~ 2 0 0 0 nm、T e : 2 0 0 0 ~ 2 4 0 0 nm) を求め、日射透過率 (T) に対する割合を下記算出式にて求めた。なお、下記算出式において、下付き文字は波長領域を表す。

$$\text{算出式: } T a (\%) = T_{1200 \sim 1400} / T$$

$$T b (\%) = T_{1400 \sim 1600} / T$$

$$15 T c (\%) = T_{1600 \sim 1800} / T$$

$$T d (\%) = T_{1800 \sim 2000} / T$$

$$T e (\%) = T_{2000 \sim 2400} / T$$

## 図 3

10  
15  
20  
25

	T <sub>v</sub> (%)	T <sub>s</sub> (%)	H (%)	T <sub>nr</sub> (%)	T <sub>mlr</sub> (%)	透過率積分値 (%)				ノンメレ値
						T <sub>a</sub>	T <sub>b</sub>	T <sub>c</sub>	T <sub>d</sub>	
実施例5	83	56	0.7	47.38	0.1以下	2.90	0.20	0.06	0.04	0.09
実施例6	80	48	0.6	41.45	0.1以下	2.60	0.17	0.05	0.03	0.08
実施例7	76	44	0.9	38.92	0.1以下	2.10	0.13	0.05	0.03	0.07
実施例8	75	43	0.7	23.61	0.30	3.12	0.26	0.07	0.06	0.10
実施例9	70	39	0.7	17.56	0.10	2.56	0.19	0.06	0.06	0.09
実施例10	85	59	0.6	46.40	10.34	13.3	6.84	2.51	1.53	1.50
実施例11	80	50	0.7	31.63	0.1以下	4.93	0.30	0.003	0.004	0.003
比較例6	89	81	0.4	75.38	69.50	10.88	10.94	9.43	9.72	12.01
比較例7	80	47	0.6	45.07	41.55	8.21	6.97	5.10	4.24	4.21
比較例8	78	47	0.7	47.15	20.10	4.70	3.10	1.80	1.30	1.20
比較例9	89	75	0.5	68.87	63.76	9.98	10.10	8.50	9.01	11.25
比較例10	70	35	1.9	32.30	0.1以下	1.57	0.09	0.05	0.03	0.04
比較例11	85	70	0.4	28.83	45.20	8.10	9.34	10.10	10.20	22.20
比較例12	82	40	0.4	25.26	38.40	6.24	9.44	10.17	10.81	15.14

## (実施例 1 2)

## (1) ポリビニルブチラールの合成

純水 2890 g に、平均重合度 1700、鹹化度 99.2 モル%のポリビニルアルコール 275 g を加えて加熱溶解した。この溶解液を 15 °C に温度調節し、5 濃度 35 重量%の塩酸 201 g と n-ブチルアルデヒド 157 g とを加え、15 °C を保持して反応物を析出させた。次いで、反応系を 60 °C で 3 時間保持して反応を完了させた後、過剰の水で洗浄して未反応の n-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を汎用な中和剤である水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で 2 時間水洗後、乾燥して、白色粉末状のポリビニルブチラール樹脂を得10 った。このポリビニルブチラール樹脂の平均ブチラール化度は 68.5 モル% であった。

## (2) 紫外線吸収剤及び酸化防止剤混合可塑剤の調製

トリエチレングリコールージーエチレンブチレート (3GO) 40 重量部、酸化防止剤として 2,6-ジ-tert-ブチル-4-クレゾール (BHT) (住15 友化学社製、スマライダー BHT) 0.2 重量部、及び、紫外線吸収剤としてマロン酸 [(4-メトキシフェニル)-メチレン] 一ジメチルエステル (Clar iant 社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を均一な透明溶液になるまで攪拌混合し、可塑剤溶液を作製した。

## (3) 热線吸収剤分散可塑剤の作製

20 可塑剤溶液 40 重量部に対し、ITO 粉末 (三菱マテリアル社製) 1 重量部と、分散安定剤としてポリリン酸エステル塩 0.1 重量部とを添加し、水平型のマイクロビーズミルにて、可塑剤溶液中に ITO 微粒子を分散させた。次いで、この溶液を攪拌しながら、アセチルアセトン 0.2 重量部を添加し、熱線吸収剤分散可塑剤を作製した。

## (4) 合わせガラス用中間膜の製造

ポリビニルブチラール樹脂 100 重量部に対して、熱線吸収剤分散可塑剤 40 重量部、及び、全系に対してマグネシウム含有量が 60 ppm となるよう 2-エチル酇酸マグネシウム適量を添加し、これをミキシングロールで充分に混練した

後、プレス成形機を用いて150°Cで30分間プレス成形し、平均膜厚0.76 mmの中間膜を得た。

#### (5) 合わせガラスの製造

得られた中間膜を、その両端から30cm×30cm×厚さ2.5mmの透明5なフロートガラスで挟み込み、これをゴムバック内に入れ、2660Paの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオープンに移し、更に90°Cで30分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスをオートクレーブ中で135°C、圧力118N/cm<sup>2</sup>の条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

10

#### (実施例13)

紫外線吸収剤であるマロン酸 [(4-メトキシフェニル)-メチレン] -ジメチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) の配合量を0.4重量部とし、かつ、ITO粉末 (三菱マテリアル社製) の配合量を0.153重量部としたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

#### (実施例14)

紫外線吸収剤であるマロン酸 [(4-メトキシフェニル)-メチレン] -ジメチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) の配合量を0.4重量部とし、かつ、ITO粉末 (三菱マテリアル社製) の配合量を0.206重量部としたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

#### (実施例15)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル)-メチレン] -ジメチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.258重量部を用いる代りに、マロン酸 [(4-メトキシフェニル)-メチレン] -ジメチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.4重量部と、2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-メチルフェニ

ル) - 5-クロロベンゾトリアゾール (チバガイギー社製、Tinuvin 326) 0.4 重量部とを併用したこと以外は実施例 12 と同様にして合わせガラスを作製した。

5 (実施例 16)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジメチルエステル (Clariant 社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を用いる代りに、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジメチルエステル (Clariant 社製、Hostavin PR-25) 0.10 2 重量部と、2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-メチルフェニル) -5-クロロベンゾトリアゾール (チバガイギー社製、Tinuvin 326) 0.2 重量部とを併用し、かつ、ITO粉末 (三菱マテリアル社製) の配合量を 0.3 重量部としたこと以外は実施例 12 と同様にして合わせガラスを作製した。

15

(実施例 17)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジメチルエステル (Clariant 社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を用いる代りに、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジメチルエステル (Clariant 社製、Hostavin PR-25) 0.20 2 重量部と、2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-メチルフェニル) -5-クロロベンゾトリアゾール (チバガイギー社製、Tinuvin 326) 0.2 重量部とを併用し、かつ、ITO粉末 (三菱マテリアル社製) の配合量を 0.6 重量部としたこと以外は実施例 12 と同様にして合わせガラスを作製した。

(実施例 18)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジ

メチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を用いる代りに、2-エチル2' -エトキシーオキサルアニリド (Clariant社製、Sanduvor VSU) 0.8 重量部を用いたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

5

(実施例19)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジメチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を用いる代りに、2-エチル2' -エトキシーオキサルアニリド (Clariant社製、Sanduvor VSU) 0.4 重量部を使用し、かつ、ITO粉末 (三菱マテリアル社製) の配合量を0.3 重量部としたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

(実施例20)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジメチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を用いる代りに、2-エチル2' -エトキシーオキサルアニリド (Clariant社製、Sanduvor VSU) 0.4 重量部と、2-(2' -ヒドロキシ-3' -t-ブチル-5' -メチルフェニル) -5-クロロベンゾトリアゾール (チバガイギー社製、Tinuvin 326) 0.4 重量部とを併用したこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

(実施例21)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジメチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を用いる代りに、2-エチル2' -エトキシーオキサルアニリド (Clariant社製、Sanduvor VSU) 0.2 重量部と、2-(2' -ヒドロキシ-3' -t-ブチル-5' -メチルフェニル) -5-クロロベンゾト

リアゾール（チバガイギー社製、Tinuvin 326）0.2重量部とを併用し、かつ、ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を0.3重量部としたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

5 (参考例1)

紫外線吸収剤として、マロン酸〔(4-メトキシフェニル)-メチレン〕-ジメチルエステル(Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8重量部を用いる代りに、2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール（チバガイギー社製、Tinuvin 326）0.8重量部を用いたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

(参考例2)

紫外線吸収剤として、マロン酸〔(4-メトキシフェニル)-メチレン〕-ジメチルエステル(Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8重量部を用いる代りに、2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール（チバガイギー社製、Tinuvin 326）0.4重量部を用い、かつ、ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を0.3重量部としたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

(参考例3)

紫外線吸収剤として、マロン酸〔(4-メトキシフェニル)-メチレン〕-ジメチルエステル(Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8重量部を用いる代りに、2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール（チバガイギー社製、Tinuvin 326）0.4重量部を用い、かつ、ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を0.6重量部としたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラ

スを作製した。

(参考例4)

5 紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジ  
メチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を用いる代りに、オクタベンゾン (チバガイギー社製、Chimassorb 81) 0.8 重量部を用いたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

10 (参考例5)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジ  
メチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を用いる代りに、オクタベンゾン (チバガイギー社製、Chimassorb 81) 0.4 重量部を用い、かつ、ITO粉末 (三菱マテリアル社製) の  
15 配合量を0.3 重量部としたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

(参考例6)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジ  
20 メチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.8 重量部を用いる代りに、2, 4-tert-ブチルフェニル-3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート (チバガイギー社製、Tinuvin 120) 0.8 重量部を用いたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを作製した。

25

(参考例7)

紫外線吸収剤として、マロン酸 [(4-メトキシフェニル) -メチレン] -ジ  
メチルエステル (Clariant社製、Hostavin PR-25) 0.

8 重量部を用いる代りに、2, 4-tert-ブチルフェニル-3, 5-ジ-tert-エチル-4-ヒドロキシベンゾエート（チバガイギー社製、Tinuvin 120）0.4 重量部を用い、かつ、ITO粉末（三菱マテリアル社製）の配合量を0.3 重量部としたこと以外は実施例12と同様にして合わせガラスを  
5 作製した。

実施例12～21及び参考例1～7で作製した合わせガラスについて、以下の方法で評価を行った。

結果を表4に示した。

10

#### （初期光学特性測定）

直記分光光度計（島津製作所社製、U-4000）を使用して、JIS Z 8722及びJIS R 3106に準拠して、380～780 nmの波長領域での可視光透過率Tv（SUV照射前）、イエローインデックス値YI（SUV  
15 照射前）、及び、CIE1976 L\*a\*b\*表色系におけるb\*値（SUV照射前）を求めた。

#### （SUV照射試験後光学特性測定）

5 cm×10 cmの照射サンプルを作製し、以下の条件でSUV照射試験を行  
20 った。

試験装置：アイスーパーUVテスター（岩崎電気社製、SUV-F11型）  
UV強度：100 mW/cm<sup>2</sup>  
限定波長：295～450 nm  
ブラックパネル温度：63 °C  
25 照射時間：100、200、300 時間でサンプリング  
照射距離：235 mm

SUV照射試験後、直記分光光度計（島津製作所社製、U-4000）を使用して、JIS Z 8722及びJIS R 3106に準拠して、380～78

0 nmの波長領域での可視光透過率  $T_v$  (SUV照射後)、イエローインデックス値  $Y_I$  (SUV照射後)、及び、CIE1976 L\*a\*b\*表色系における  $b^*$  値 (SUV照射後) を測定し、下記式により、 $\Delta T_v$ 、 $\Delta Y_I$  及び  $\Delta b^*$  を求めた。

$$5 \quad \Delta T_v = T_v \text{ (SUV照射後)} - T_v \text{ (SUV照射前)} \quad (1)$$

$$\Delta Y_I = Y_I \text{ (SUV照射後)} - Y_I \text{ (SUV照射前)} \quad (2)$$

$$\Delta b^* = b^* \text{ (SUV照射後)} - b^* \text{ (SUV照射前)} \quad (3)$$

表 4

5  
10  
15  
20  
25

	$\Delta T_v(\%)$			$\Delta Y_1$			$\Delta b^*$		
	100時間後	200時間後	300時間後	100時間後	200時間後	300時間後	100時間後	200時間後	300時間後
実施例12	-1.5	-1.5	-1.5	-1.5	-1.4	-1.0	-0.9	-0.8	-0.6
実施例13	-0.8	-0.8	-0.8	-	-	-	-	-	-
実施例14	-0.9	-0.9	-0.9	-	-	-	-	-	-
実施例15	-1.4	-1.3	-1.6	-0.5	0.7	2.4	-0.3	0.4	1.3
実施例16	-0.5	-0.5	-0.5	-	-	-	-	-	-
実施例17	-0.7	-0.7	-0.8	-	-	-	-	-	-
実施例18	-1.5	-1.6	-1.6	-1.3	-1.1	-0.9	-0.8	-0.6	-0.3
実施例19	-0.7	-0.7	-	-	-	-	-	-	-
実施例20	-1.4	-1.5	-1.7	-0.2	1.0	2.6	-0.2	0.5	1.5
実施例21	-0.6	-0.6	-0.9	-	-	-	-	-	-
参考例1	-1.5	-2.3	-3.1	1.5	4.6	7.7	0.9	2.7	4.4
参考例2	-0.7	-1.5	-2.1	-	-	-	-	-	-
参考例3	-0.9	-2.1	-2.9	-	-	-	-	-	-
参考例4	-1.8	-2.6	-3.7	1.6	4.5	7.9	0.9	2.7	4.5
参考例5	-1.0	-1.6	-2.4	-	-	-	-	-	-
参考例6	-1.7	-2.6	-4.0	1.5	4.7	8.0	0.9	2.8	4.6
参考例7	-1.0	-1.7	-2.7	-	-	-	-	-	-

産業上の利用可能性

本発明によれば、透明性、遮熱性、電磁波透過性及び耐候性に優れる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供できる。

## 請求の範囲

1. クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、周波数0.1～5 10 MHz及び2～26.5 GHzにおける電磁波シールド性能が10 dB以下、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、かつ、300 nm～2100 nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。
- 10 2. 測定周波数1 MHz～1.86 GHzにおける比誘電率が4.5以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が0.1以下であり、クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、かつ、300 nm～2100 nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。
- 15 3. 測定周波数10 MHzにおける比誘電率が4.2以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が0.08以下であることを特徴とする請求の範囲第2項記載の合わせガラス用中間膜。
- 20 4. 測定周波数100 MHzにおける比誘電率が3.8以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が0.08以下であることを特徴とする請求の範囲第3項記載の合わせガラス用中間膜。
- 25 5. 測定周波数1 GHzにおける比誘電率が3.4以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が0.08以下であることを特徴とする請求の範囲第4項記載の合わせガラス用中間膜。

6. 測定周波数 1. 8 GHz における比誘電率が 3. 3 以下及び／又は誘電正接  $\tan \delta$  が 0. 08 以下であることを特徴とする請求の範囲第 5 項記載の合わせガラス用中間膜。

5

7. クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1. 0 % 以下、可視光透過率が 70 % 以上、300 nm ~ 2100 nm の波長領域での日射透過率が可視光透過率の 85 % 以下、かつ、波長領域 1500 ~ 2100 nm 10 m での中赤外線透過率が 20 % 以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

8. 波長領域 780 ~ 1500 nm での近赤外線透過率が 70 % 以下であることを特徴とする請求の範囲第 7 項記載の合わせガラス用中間膜。

15

9. クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1. 0 % 以下、可視光透過率が 70 % 以上、300 nm ~ 2100 nm の波長領域での日射透過率が可視光透過率の 85 % 以下であり、かつ、波長領域 300 ~ 250 20 0 nm の日射透過率積分値  $T$  のうち、波長領域 1400 ~ 1600 nm の透過率積分値の割合  $T_b$  が 10. 0 % 以下及び／又は波長領域 1800 ~ 2000 nm の透過率積分値の割合  $T_d$  が 2. 0 % 以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

25 10. クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1. 0 % 以下、可視光透過率が 70 % 以上、300 nm ~ 2100 nm の波長領域での日射透過率が可視光透過率の 85 % 以下であり、かつ、波長領域 300 ~ 25

0 0 n m の日射透過率積分値  $T$  のうち、波長領域 1 2 0 0 ~ 1 4 0 0 n m の透過率積分値の割合  $T_a$  が 1 5. 0 % 以下及び／又は波長領域 1 6 0 0 ~ 1 8 0 0 n m の透過率積分値の割合  $T_c$  が 3. 0 % 以下及び／又は波長領域 2 0 0 0 ~ 2 4 0 0 n m の透過率積分値の割合  $T_e$  が 2. 0 % 以下である

5 ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

1 1. クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとしたときに、ヘイズが 1. 0 % 以下、可視光透過率が 7 0 % 以上、3 0 0 n m ~ 2 1 0 0 n m の波長領域で 10 の日射透過率が可視光透過率の 8 5 % 以下であり、かつ、波長領域 3 0 0 ~ 2 5 0 0 n m の日射透過率積分値  $T$  のうち、波長領域 1 2 0 0 ~ 1 4 0 0 n m の透過率積分値の割合  $T_a$  が 1 5. 0 % 以下及び／又は波長領域 1 4 0 0 ~ 1 6 0 0 n m の透過率積分値の割合  $T_b$  が 1 0. 0 % 以下及び／又は波長領域 1 6 0 0 ~ 1 8 0 0 n m の透過率積分値の割合  $T_c$  が 3. 0 % 以下及び／又は波長領域 1 8 0 15 0 ~ 2 0 0 0 n m の透過率積分値の割合  $T_d$  が 2. 0 % 以下及び／又は波長領域 2 0 0 0 ~ 2 4 0 0 n m の透過率積分値の割合  $T_e$  が 2. 0 % 以下である

15 ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

1 2. クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択 20 される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとし、強度 1 0 0 mW / c m <sup>2</sup> 、波長 2 9 5 ~ 4 5 0 n m の紫外線を 3 0 0 時間照射したときに、前記紫外線 照射後の前記合わせガラスの可視光透過率の低下が 2. 0 % 以下である

25 ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

25 1 3. クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択 20 される 2 枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとし、強度 1 0 0 mW / c m <sup>2</sup> 、波長 2 9 5 ~ 4 5 0 n m の紫外線を 3 0 0 時間照射したときに、前記紫外線 照射後の前記合わせガラスのイエローインデックス値の増加が 4. 0 以下である

ことを特徴とする請求の範囲第12項記載の合わせガラス用中間膜。

14. クリアガラス、グリーンガラス及び高熱線吸収ガラスからなる群より選択される2枚のガラスの間に介在させて合わせガラスとし、強度100mW/cm<sup>2</sup>、波長295～450nmの紫外線を300時間照射したときに、前記紫外線照射後の前記合わせガラスのCIE1976L\*a\*b\*表色系におけるb\*値の増加が3.0以下であることを特徴とする請求の範囲第12又は13項記載の合わせガラス用中間膜。

10 15. 300～2100nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の85%以下であることを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13又は14項記載の合わせガラス用中間膜。

16. 可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜で  
15 あって、  
前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部、可塑剤20～60重量部、並びに、錫ドープ酸化インジウム(ITO)微粒子、アンチモンドープ酸化錫ATO微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛AZO微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛IZO微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種の微粒子0.1～3重量部を含有するものであり、  
前記微粒子は、平均粒径が80nm以下であり、かつ、粒径100nm以上の粒子が1個/μm<sup>2</sup>以下に分散しているものである  
25 ことを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14又は15項記載の合わせガラス用中間膜。

17. 可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜で

あって、

前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部、可塑剤20～60重量部、並びに、ジイモニウム系色素、アミニウム系色素、フタロシアニン系色素、アントラキノン系色素、ポリメチン系色素、ベンゼンジチオール型アンモニウム系化合物、チオ尿素誘導体及びチオール金属錯体からなる群より選択される少なくとも1種の化合物0.00001～5重量部を含有するものであり、  
前記化合物は、前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物中に均一に分散しているものである  
10 ことを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14又は15項記載の合わせガラス用中間膜。

18. 可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜であって、  
15 前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部、可塑剤20～60重量部、錫ドープ酸化インジウム(ITO)微粒子、アンチモンドープ酸化錫ATO微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛AZO微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛IZO微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種の微粒子0.1～3重量部、並びに、ジイモニウム系色素、アミニウム系色素、フタロシアニン系色素、アントラキノン系色素、ポリメチン系色素、ベンゼンジチオール型アンモニウム系化合物、チオ尿素誘導体及びチオール金属錯体からなる群より選択される少なくとも1種の化合物0.00001～5重量部を含有するものであり、  
20 前記微粒子は、平均粒径が80nm以下であり、かつ、粒径100nm以上の粒子が1個/μm<sup>2</sup>以下に分散しているものであり、  
前記化合物は、前記可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物中に均一に分散しているものである

ことを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14又は15項記載の合わせガラス用中間膜。

19. ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルブチラール樹脂であることを特徴とする請求の範囲第16、17又は18項記載の合わせガラス用中間膜。

20. 可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に、紫外線吸収剤として、マロン酸エステル系化合物及び／又はシウ酸アニリド系化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第16、17、18又は19項記載の合わせガラス用中間膜。

21. 可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に、紫外線吸収剤として、マロン酸エステル系化合物及び／又はシウ酸アニリド系化合物と、ベンゾトリアゾール系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物、ベンゾエート系化合物、及び、ヒンダードアミン系化合物からなる群より選択される少なくとも1種との混合物を含有することを特徴とする請求の範囲第16、17、18、19又は20項記載の合わせガラス用中間膜。

22. 可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に、接着力調整剤として有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩、又は、变成シリコンオイルを含有することを特徴とする請求の範囲第16、17、18、19、20又は21項記載の合わせガラス用中間膜。

23. 可塑化ポリビニルアセタール樹脂組成物は、更に、分散安定剤として硫酸系エステル化合物、リン酸エ斯特ル系化合物、リシノール酸、ポリリシノール酸、ポリカルボン酸、多価アルコール型界面活性剤、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラールからなる群より選択される少なくとも1種を含有することを特徴とする請求の範囲第16、17、18、19、20、21又は22項記載の合わ

せガラス用中間膜。

24. 請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、  
13、14、15、16、17、18、19、20、21、22又は23項記載  
5 の合わせガラス用中間膜を用いてなることを特徴とする合わせガラス。

25. 請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、  
13、14、15、16、17、18、19、20、21、22又は23項記載  
の合わせガラス用中間膜又は請求の範囲第24項記載の合わせガラスを用いてな  
10 ることを特徴とする車両用窓材料。

26. 請求の範囲第25項記載の車両用窓材料を用いてなることを特徴とする車  
両。

15 27. 請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、  
13、14、15、16、17、18、19、20、21、22又は23項記載  
の合わせガラス用中間膜又は請求の範囲第24項記載の合わせガラスを用いてな  
るることを特徴とする建築用材料。

20 28. 請求の範囲第27項記載の建築用材料を用いてなることを特徴とする建築  
物。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/07583

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C03C27/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C03C27/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2002  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2002 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 727306 A2 (Central Glass Co., Ltd.), 21 August, 1996 (21.08.96), Full text & JP 8-259279 A Full text & US 5830568 A	1-28
X	JP 10-297945 A (Central Glass Co., Ltd.), 10 November, 1998 (10.11.98), Full text (Family: none)	1-28
X	JP 2001-39741 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 13 February, 2001 (13.02.01), Full text (Family: none)	1-28

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
07 November, 2002 (07.11.02)Date of mailing of the international search report  
19 November, 2002 (19.11.02)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/07583

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1136457 A1 (Asahi Glass Co., Ltd.), 26 September, 2001 (26.09.01), Full text & JP 2001-151539 A Full text	1-11, 15, 16, 19, 24-28

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl. ' C03C 27/12

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl. ' C03C 27/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2002年  
日本国登録実用新案公報 1994-2002年  
日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	EP 727306 A2 (CENTRAL GLASS COMPANY, LIMITED) 1996.08.21, 全文 & JP 8-259279 A, 全文 & US 5830568 A	1-28
X	JP 10-297945 A (セントラル硝子株式会社) 1998.11.10, 全文 (ファミリーなし)	1-28
X	JP 2001-39741 A (積水化学工業株式会社) 2001.02.13, 全文 (ファミリーなし)	1-28

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 07.11.02	国際調査報告の発送日 19.11.02
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 深草 祐一 電話番号 03-3581-1101 内線 3416

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	EP 1136457 A1 (ASAHI GLASS COMPANY, LTD.) 2001.09.26, 全文 & JP 2001-151539 A, 全文	1-11, 15, 16, 19, 24-28